

解説

巨大アンテナ系クロロソームを構成するバクテリオクロロフィル分子： その生合成の解明と今後の展開[‡]

¹久留米大学医学部医化学講座

²大阪大学大学院理学研究科生物科学専攻

³立命館大学総合理工学院

原田二郎^{1*}、大岡宏造²、民秋 均³

1. はじめに

緑色硫黄細菌は *Chlorobia* 綱に属し、光合成のみで生育する絶対嫌気性の光合成細菌である。硫化物などの還元硫黄化合物を電子源とし、硫黄温泉や部分循環湖の低深水部にある嫌気層などの限られた環境に生息している。そのような環境には必ずしも十分な太陽光が届くとは限らず、通常の光合成生物が生育できないほど微弱光であることも少なくない。しかし緑色硫黄細菌はクロロソーム¹⁾と呼ばれる高効率な光捕集膜外アンテナ装置をもっているため(図1)、地表に届く太陽光の0.1%以下の光環境下でも生育可能である。後述するようにクロロソームの優れた光捕集能力は、他のアンテナ系とは比べものにならないほど高密度にクロ

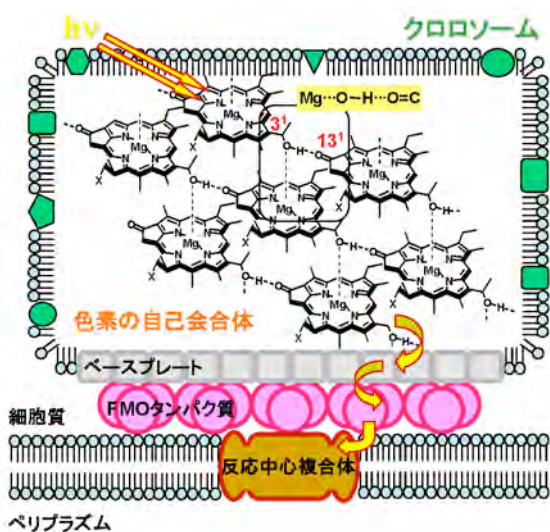


図1 緑色硫黄細菌の光合成器官の模式図
黄色い矢印は、光エネルギーの伝達経路を示す。

ロフィル分子が自己集積化されていることに起因する。吸収された光エネルギーは、クロロソームの基底部にあるベースプレートとFMOタンパクを介して、タイプ1反応中心複合体へと伝達される。もともと我々の研究の興味は、この一連の光エネルギー伝達系と、引き続き起こる電子移動反応にあるが、ここ数年は、光捕集に関わるバクテリオクロロフィル(BChl)色素の生合成に関する研究も行ってきた。その理由は、ある種の緑色硫黄細菌において、クロロソーム内の色素が環境によって変化するという興味深い現象に遭遇したからである。原因を探ると、1つの色素合成酵素にたどり着いた。その合成酵素の変異体を作製することで、まだ謎の多いクロロソームの構造研究に新たな展開の糸口が見え始めている。本稿は、まず色素の自己会合体からなるクロロソームの構造を簡単に紹介し、BChlの生合成系を研究し始めた経緯と我々の得た知見について解説する。

2. クロロソームの構造と内在するバクテリオクロロフィル分子の特徴

クロロソームは種々の膜タンパク質を含んだ脂質一重膜と基底部のベースプレートによって外枠が構成されている、20~200 nmスケールの楕円形状の小胞である(図1)。この小胞は、基底部のベースプレートとFMOタンパクを介して細胞質側の膜表面に結合しており、その近傍には反応中心複合体が存在する。内部には約 $1.4 \sim 2.15 \times 10^5$ 分子²⁾のBChl c、dま

[‡] 解説特集「光合成細菌 —研究材料としての魅力—」

* 連絡先 E-mail: jiro_harada@med.kurume-u.ac.jp

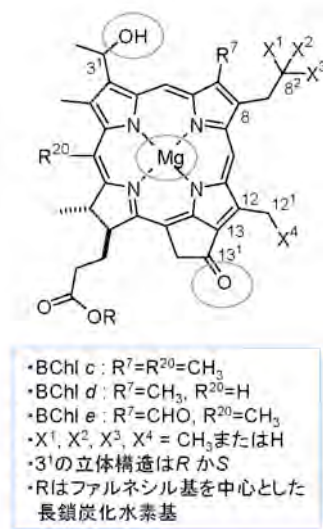


図2 BChl c, d および e の分子構造

これらの色素は、C3'位のエピマー体と、C8位およびC12位に異なる側鎖を持ったホモログ体の混合物として生体内に存在する。自己会合体の形成に必要な側鎖を、丸によって示した。

または e が存在している (図2)。これらの色素分子は、BChl c を基に構造を比較すると、C20位のメチル基が水素原子であるのが BChl d で、C7位のメチル基がホルミル基となっているのが BChl e である。これら側鎖の違いによって BChl d と e のQ_y帯の吸収極大は、BChl c と比較して、それぞれ10 nmと15 nmほど短波長シフトしている (BChl c, 660 nm; BChl d, 650 nm; BChl e, 646 nm: これらの値は有機溶媒アセトン中で測定したモノマー状態の吸収極大を示す)。またBChl cldle分子は、生体内ではC3'位におけるRとSの立体異性体(エピマー)とC8位とC12位に異なるアルキル鎖をもつ同族体(ホモログ体)の混合物として存在している。クロロソームの構造において、これらBChl色素の大きな特徴は、その内部で色素だけの自己会合体を形成している点である。これは BChl cldle の分子構造自体に由来しており、C3'位の反応性の高いヒドロキシ基が、近傍の2分子のBChlとの間でそれぞれC13位のケト基と水素結合、中心マグネシウムと配位結合することで (Mg...O—H...O=C) 超分子構造が形成されている (図1, 2)。この形成にはタンパク質が一切関与せず、他の光合成生物がもつ色素とタンパク質の複合体であるアンテナ系とは本質的に異なっている。この自己会合による超分子構造は、これまでロッドモデルで説明される円柱形状であると考えられてきたが¹⁾、近年になってラメラタイプ³⁾やシートロールタイプ⁴⁾と新しいモデル

が提唱されており、未だ明らかとなっていない。クロロソームが巨大なアンテナ複合体であるために構造解析が容易ではなく、分光学的解析および各種顕微鏡観察等によるデータの蓄積が、構造の解明に不可欠である。

3. *Chlorobaculum parvum*で観察された、クロロソーム内の色素組成の変化

我々が色素合成系の研究を行うきっかけとなったのは、緑色硫黄細菌 *Chlorobaculum (Cba.) parvum* (*Chlorobium vibrioforme* f. sp. *thiosulfatophilum* より改名⁵⁾)の継代培養を続けていると、クロロソームを構成する色素分子種の比率が変化するという現象に気づいたからである⁶⁾。クロロソーム内の色素は種によって異なり、BChl c, d および e のどれか1種類であるのが一般的である。ところが過去の文献を調べてみたところ、*Cba. parvum* NCIB 8327株は、培養条件によってクロロソーム内の色素組成が変化することが報告されていた⁷⁾。我々はこのNCIB 8327株の色素組成変化に興味をもち、BChl c のみ、あるいはBChl d のみを持つ亜株を単離した(それぞれC亜株およびD亜株とする)⁶⁾。一方、NCIB 8327株と同一株であるDSM 263株ではBChl c と d が同一細胞内に混在し、それぞれの比率は約94%と6%であった⁸⁾ (我々は16S rDNAの解析から、NCIB 8327株とDSM 263株は同一株であることを確認している。DSM 263株を263亜株とする)。前項で述べたように、2つの色素の構造上の違いはC20位のメチル基の有無である(図2)。我々は同一株から、異なる色素組成を示す亜株が発生する原因を探るため、C20位メチル基転移酵素 (BchU) をコードする**bchU**遺伝子の塩基配列を解析した。その結果、D亜株では**bchU**遺伝子の1箇所(アデニン)挿入によるフレームシフトが起こったため、酵素が不活化していることが分かった(図3)。これは、Marescaらが同亜株を用いて解析した変異と一致していた⁹⁾。一方、BChl cを合成するC亜株と263亜株とでは、BchUのアミノ酸配列のうち3残基のみ異なっており、このわずかな違いが、異なる色素組成を示す原因と推察された。ここで興味深いことに、263亜株にはD亜株で確認された変異と同じ箇所にアデニン塩基が存在していた(図3)¹⁰⁾。しかしその5塩基後のアデニンが欠失しており、結果として**bchU**のフレーム自体に影響はなく、活性をもつ酵

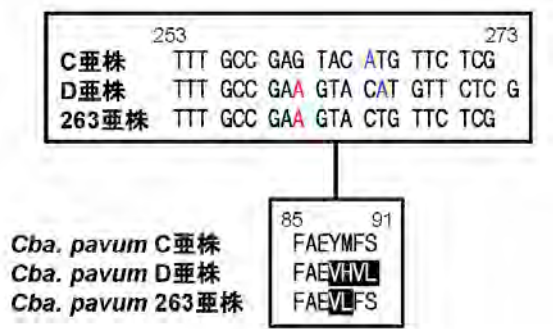


図3 *Cba. parvum*のC垂株、D垂株および263垂株の**bcuU**遺伝子の部分配列と対応するアミノ酸配列の比較。塩基配列において、D垂株で挿入失活の原因となったアデニンを赤で示している。また、263垂株の塩基配列に存在しないアデニンを青で示している。アミノ酸配列では、C垂株と異なる配列を白抜きのアミノ酸で示している。

素が発現していることがわかった。これらの結果から、我々は以下の仮説を考えている。*Cba. parvum* NCIB 8327株は、自然界より BChl *d* をもつ株として単離されている⁷⁾。この時点ですでにD垂株で観察された1塩基(アデニン)の挿入変異が起こっており、*bcuU*遺伝子是不活化されていたと考えられる。その後様々な機関に株分けされ継代培養を繰り返すうちに、不活化した*bcuU*遺伝子にさらに変異が導入され、再びタンパクとして翻訳されるようになった。つまり263垂株では挿入塩基の5つ後のアデニンの欠失、C垂株では挿入したアデニンの欠失が起こったのであろうと考えている。また、C垂株とD垂株を用いて2つの色素の生理的機能の違いを調べた結果、BChl *c* は *d* よりも菌体の生育に有利に働き、特にD垂株はわずかな酸素の混入でも著しく生育阻害を受けることが分った¹¹⁾。また、BChl *c* をもつ株は BChl *d* をもつ株よりも微弱光での生育が速いことも報告されている^{6,9)}。これらの違いが選択圧として働き、D垂株の不活化*bcuU*遺伝子に復帰突然変異を生じさせたと思われる。

この解析を行って我々が疑問を抱いているのは、自然界から BChl *d* をもつ菌株の単離の報告が頻繁にあることである。BChl *c* は BChl *d* よりも細菌にとって有利に働くのは実験室内でのことであり、自然界においては BChl *d* をもつことの優位性があるのではないかと推測している。しかしながら自然界において BChl *d* をもつ種のすべてが、不活化された*bcuU*遺伝子を持っているのかは現在のところ不明である。本来、野生株として BChl *d* をもつ種は存在せず、環境に

応じて*bcuU*遺伝子の発現のon/offが突然変異によって行われているとしたら面白いのだが、現在のところ想像に過ぎない。

4. C20位メチル基転移酵素BchUの基質認識と反応機構

上記のように*bcuU*遺伝子の発現は、BChl *c* と *d* の合成に大きく関わっている。これらの色素の生合成経路は緑色硫黄細菌 *Cba. tepidum* (*Chlorobium tepidum* より改名⁵⁾)のゲノム解析と分子生物学的解析から明らかとなりつつある¹²⁾。クロロフィル色素の中で最初に合成経路が解明されたのは紅色細菌の BChl *a* であり、後にその功績は酸素発生型光合成生物のクロロフィル (Chl) *a* 合成経路の決定に大きく貢献した。BChl *c* 合成経路の解明はこれらの研究が基盤となり、関連酵素の殆どが (B)Chl *a* 合成経路で働く酵素遺伝子のオーソログもしくはパラログであった。しかし*bcuU*遺伝子は紅色細菌のカロテノイド合成経路で働くメチル基転移酵素遺伝子*crtF*と高い相同性を持っていた⁹⁾。*bcuU*欠損株の色素組成を調べると、他の部位の修飾基には全く影響を与えず、C20位のメチル基だけがない BChl *d* を合成していた。そのため BchUがC20位のメチル基転移酵素であることは明らかであるが、BchUが BChl *c* 生合成経路上のどの段階で働くかについては結論が得られないままであった。そこで我々は、精製BchUを用いて人工的に合成した数種類の色素と反応させ、BchUの基質特異性を調べることにした。その結果、BchUはS-adenosyl-methionine (SAM) をメチル基供与体とし¹³⁾、C3¹位の側鎖にヒドロキシ基を持つ色素に対して最も高い反応性を示すことがわかった(原田ら未発表データ)。また、C3¹位にヒドロキシ基をもっていれば、C8²位とC12¹位のアルキル鎖の構造が異なるホモログ体にも反応することが可能であった。

BchUの基質認識と反応機構について分子レベルでの詳細な情報を得るために、この酵素の結晶構造解析も行った^{14,15)}。分解能2.27Åの構造解析には成功したが、残念ながら基質となる色素との複合体を得ることができなかった。しかしモデル計算に基づき、SAMからのメチル基転移反応はTyr246が触媒残基として働く典型的なS_N2反応であることが示唆された。さらに、基質のC3¹位ヒドロキシ基に対するBchUの高い特異性には、Asn153とAsp286の関与が予想され

た。実際、これらのアミノ酸の部位特異的変異体を作製したところ酵素活性の著しい低下が見られ、我々の推測は妥当であった。

5. BChl *c/d/e* の生合成経路

このようにBchUの基質特異性を明らかにすることができたので、BChl *c/d/e* の合成に至る経路について考えてみたい¹⁶⁾。全てのクロロフィル色素分子は、ヘムを含むテトラピロール代謝経路から分岐して合成される。プロトポルフィリンIXからクロロフィリド *a* までは、ほぼ全てのクロロフィル色素において共通であると考えられ、クロロフィリド *a* に特異的な酵素が働くことにより各色素分子の合成経路へと分岐していく。BChl *c* の合成経路もクロロフィリド *a* から分岐し、13²位のメトキシカルボニル基が脱落すること

で、C3位がビニル基である3-ビニルバクテリオクロロフィリド *d* (ピロクロロフィリド *a*)が合成される(図4)。この色素のC8²位とC12¹位には、それぞれBchQとBchRによりメチル基が付加されてホモログ体が生じる。その後、C3位のビニル基が水の付加によって1-ヒドロキシルエチル基に変換され、バクテリオクロロフィリド *d* ホモログが生成する。この反応ではC3¹位が*R*と*S*の立体構造になるエピマーが生じるが、それぞれBchFとBchVが触媒する。次にこれらC3¹位にヒドロキシ基をもつ色素に対して、BchUがC20位にメチル基を導入する。BchUはこれらC8²位とC12¹位のホモログ体、C3¹位のエピマー体の全てを修飾することが可能である。最後にBchKによってC17位上にファルネシル基が付加され、BChl *c* ホモログ・エピマーが産生される。一方、BChl *d* の合成

経路に関しては、BChl *c* の合成経路からBchUの反応段階がなくなった経路と考えられる。さらに BChl *e* においては、BChl *c* の合成経路上に、C7位メチル基のホルミル化反応が加わった経路によって合成されることが考えられる。BchUはC7位ホルミル基を有する色素に対する反応性が低いことから、C20位のメチル化よりも後でホルミル化反応が起こると推測される。しかし現在の所、このホルミル化酵素については同定されていない。

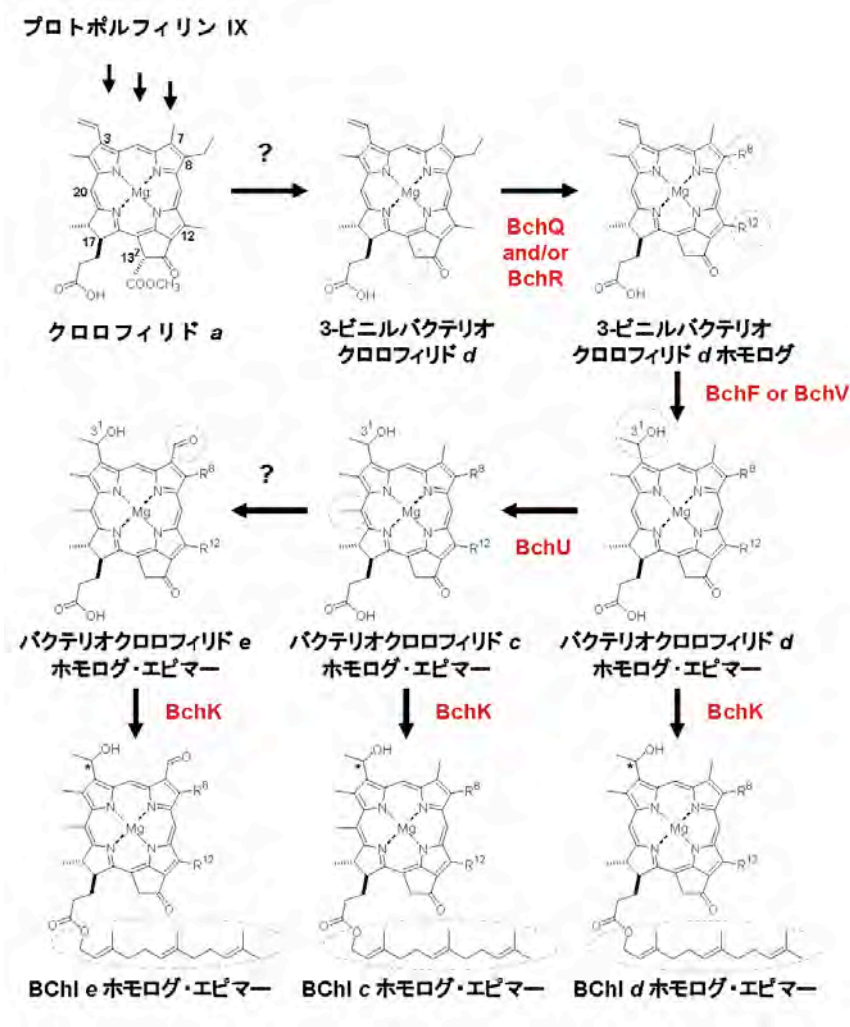


図4 緑色硫黄細菌におけるBChl *c, d* および *e* の生合成経路
 青い点線の丸は、修飾酵素が反応した後の部位を示す。R⁸はエチル基、*n*-プロピル基または*iso*-ブチル基 (BChl *e*のみネオペンチル基)。R¹²はメチル基またはエチル基。

6. BchUの変異体解析によるクロロソーム研究の新たな切り口

このように我々はBchUを中心にクロロソーム内のBChl合成に関する研究を行ってきた。最近、この酵素遺伝子の変異体を解析することにより、クロロソーム内のBChlの自己会合体形成に関する研究を新たな切り口で展開していくヒントが得られているので

紹介しておきたい。本稿の最初にも述べたが、クロロソームの詳細な構造については今でも議論が続いている。クロロソームを構成する大部分が色素の自己会合体であり、近年、色素変異体を用いた比較実験に基づいて、その構造モデルを検証しようとする研究が行われている⁴⁾。そこで我々も *Cba. parvum* DSM 263株が *bchU*の変異によって同一生体内にBChl *c* と *d* の両方の色素を持っていることに着目した。これらの色素が生体内でどのように分布しているのかが分かれば、自己会合体に関する知見が得られるのではないかと考えたのである。このような着想には、過去の同様な研究において2つの異なる見解が導き出されているという背景がある。宮武らは BChl *c* と *d* をそれぞれ生体から抽出し、*in vitro*で混合して再構成させたクロロソームを解析した結果、両方の色素は同一のクロロソーム内に存在し、混ざりあった自己会合体を形成することを報告している⁷⁾。ところがSteensgaardらは、BChl *c* と *d* が1:1で混在する *Cba. limnaeum* (*Chlorobium limicola*より改名⁹⁾) UdG 6040株を用いた解析から、両色素は同一クロロソーム内に存在するが、それぞれドメインをもっており、互いに独立した会合体を形成すると主張している¹⁸⁾。前者の結果については *in vivo*でも反映されるかという点に疑問が持たれ、また後者の解析については比較対象が少ないため、2つの色素の生体内での局在については明確な結論が得られていない。我々はこれまでの研究の中で、BchUの立体構造から予想される基質結合部位に変異を加えることにより、メチル転移活性が部分的に低下する変異酵素をいくつか見出している。このような変異BchUを *Cba. tepidum* の

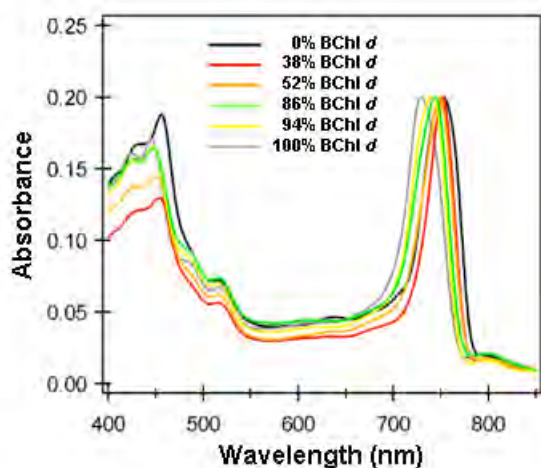


図5 *Cba. tepidum*の*bchU*変異体から単離したクロロソームの77Kにおける紫外可視吸収スペクトル測定

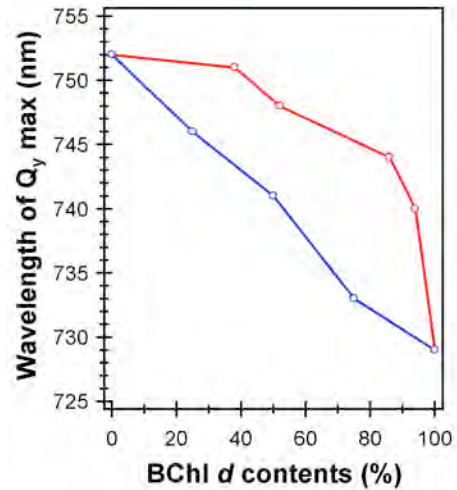


図6 BChl *d* 含量の変化に伴うクロロソームのQ_y帯ピーク波長の変化

実測値(赤丸-赤実線)とシミュレーション値(青丸-青実線)を比較した。実測値は図5の測定結果をプロットした。シミュレーションは、図5の0% BChl *d*と100% BChl *d*の値を用いて算出した。

生体内で発現させれば、同一種由来で BChl *c/d* 組成が異なる株が得られ、上記の見解のどちらが正しいかを判定することができるのではないかと考えた。そこで *Cba. tepidum* の*bchU*欠損株を作製し、これを親株として変異*bchU*遺伝子を導入した数種類の変異株を得た。単離したクロロソームの色素組成を解析したところ、BChl *c* と *d* の全量に対する BChl *d* の割合は、野生株で0%、親株 (*bchU*欠損株) で100%となるが、得られた変異株は38、52、86と94%であった。このような段階的に BChl *d* の割合が異なるクロロソームを単離し、低温紫外可視吸収スペクトルを測定したところ、クロロソームのQ_y帯における吸収極大の波長は、BChl *d* の割合が多くなるほど短波長側にシフトしているのが観察された(図5)。またQ_yピークの波長を BChl *d* の割合に対してプロットし、シミュレーションから得られた結果と比較した(図6)。このシミュレーションは BChl *d* の割合が0%と100%のクロロソームのデータを用いたものであり、上述のSteensgaardらの見解である「クロロソーム内でBChl *c* と *d* が各々別の会合体を形成」したときを想定している。実測結果はシミュレーションとは異なり、BChl *d* がある程度以上の割合で存在しない限り、Q_yピークの大きな短波長シフトは起こらないことが分かった。今回は示していないが、別の解析でもシミュレーションとは異なる結果が示されている

ことから、我々は BChl *c* と *d* は同一クロロソーム内で、混ぜ合わさった自己会合体を形成しているという、宮武らの見解を *in vivo* でも支持する結論に至った。しかしながら Steensgaardらの結果を支持しなかった理由として、自己会合体の形成方法が種によって異なっているという可能性は否定できない。

このように我々は変異株を用いて BChl *c* と *d* の色素組成が異なるクロロソームを作製することができるようになり、自己会合体色素の物理化学的性質を研究する上で良い材料を提供するものと期待している。また BChl *c/d* の組成比の違いによる励起エネルギー移動効率を評価することも可能である。これについては、今後解析予定である。

7. おわりに

クロロソームに存在する BChl の生合成経路に関する理解が10年前と比べて飛躍的に深まったのは、言うまでもなく近年のゲノムプロジェクトの成果と *C. ba. tepidum* で形質転換系が確立したことによる。まだ同定されていない合成酵素の探索も急がれるが、今後は経路全体を含めた制御、および他の代謝系との関わりに研究の興味が移っていくと考えられる。特に合成された大量の色素がクロロソームに運ばれて組織化する機構は、巨大アンテナ系のバイオジェネシスとして重要な研究課題の一つとなるであろう。このことは、未だ長い論争に決着がつかない BChl の自己会合体を含めたクロロソームの構造解明にも深く関わってくる問題である。個々の研究から全体に展開できるのは、光合成システムが複数の機構からなる大きなネットワークをもつからであり、これは現在の光合成研究の1つの流れである。我々の緑色硫黄細菌の研究も個から全への広がりを目指し、光合成研究全般に貢献したい。

謝辞

本稿で紹介した我々の研究の遂行は、共同研究者の日々の絶え間ない努力の上に成り立っている。この場を借りて感謝を申し上げる：Robert E. Blankenship 教授 (ワシントン大学)、福山恵一教授、和田啓助教 (大阪大学)、佐賀佳央准教授 (近畿大学)、野口正人教授 (久留米大学)、高橋俊介、大角重明 (立命館大学)、Aaron M. Collin、Jianzhong Wen (ワシントン大学) 各君。

Received June 30, 2010, Accepted July 15, 2010,
Published August 31, 2010

参考文献

- Blankenship, R. E., and Matsuura, K. (2003) Antenna complexes from green photosynthetic bacteria, in *Light-Harvesting Antennas in Photosynthesis* (Green, B. R., and Parson, W. W., Eds.) pp 195-217, Kluwer, Dordrecht, The Netherlands.
- Saga, Y., Shibata, Y., Itoh, S., and Tamiaki, H. (2007) Direct counting of submicrometer-sized photosynthetic apparatus dispersed in medium at cryogenic temperature by confocal laser fluorescence microscopy: estimation of the number of bacteriochlorophyll *c* in single light-harvesting antenna complexes chlorosomes of green photosynthetic bacteria, *J. Phys. Chem. B* **111**, 12605-12609.
- Pšencik, J., Ikonen, T. P., Laurinmaki, P., Merckel, M. C., Butcher, S. J., Serimaa, R. E., and Tuma, R. (2004) Lamellar organization of pigments in chlorosomes, the light harvesting complexes of green photosynthetic bacteria, *Biophys. J.* **87**, 1165-1172.
- Ganapathy, S., Oostergetel, G. T., Wawrzyniak, P. K., Reus, M., Gomez Maqueo Chew, A., Buda, F., Boekema, E. J., Bryant, D. A., Holzwarth, A. R., and de Groot, H. J. (2009) Alternating syn-anti bacteriochlorophylls form concentric helical nanotubes in chlorosomes, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **106**, 8525-8530.
- Imhoff, J. F. (2003) Phylogenetic taxonomy of the family Chlorobiaceae on the basis of 16S rRNA and *fmo* (Fenna-Matthews-Olson protein) gene sequences, *Int. J. Syst. Evol. Microbiol.* **53**, 941-951.
- Saga, Y., Oh-oka, H., Hayashi, T., and Tamiaki, H. (2003) Presence of exclusively bacteriochlorophyll-*c* containing substrain in the culture of green sulfur photosynthetic bacterium *Chlorobium vibrioforme* strain NCIB 8327 producing bacteriochlorophyll-*d*, *Anal. Sci.* **19**, 1575-1579.
- Broch-Due, M., and Ormerod, J. G. (1978) Isolation of a Bchl *c* mutant from *Chlorobium* with Bchl *d* by cultivation at low light intensity, *FEMS Microbiol. Lett.* **3**, 305-308.
- Saga, Y., Osumi, S., Higuchi, H., and Tamiaki, H. (2005) Bacteriochlorophyll-*c* homolog composition in green sulfur photosynthetic bacterium *Chlorobium vibrioforme* dependent on the concentration of sodium sulfide in liquid cultures, *Photosynth. Res.* **86**, 123-130.
- Maresca, J. A., Gomez Maqueo Chew, A., Ponsati, M. R., Frigaard, N. U., Ormerod, J. G., and Bryant, D. A. (2004) The *bchU* gene of *Chlorobium tepidum* encodes the c-20 methyltransferase in bacteriochlorophyll *c* biosynthesis, *J. Bacteriol.* **186**, 2558-2566.
- Harada, J., Saga, Y., Oh-oka, H., and Tamiaki, H. (2005) Natural reverse mutations of the inactivated

- bchU* gene in *Chlorobium vibrioforme* NCIB 8327, in *Photosynthesis: Fundamental Aspects to Global Perspective* (der Est, A., and Bruce, D., Eds.) pp 199-120, Allen Press, Lawrence, KS, USA.
11. Harada, J., Saga, Y., Oh-oka, H., and Tamiaki, H. (2005) Different sensitivities to oxygen between two strains of the photosynthetic green sulfur bacterium *Chlorobium vibrioforme* NCIB 8327 with bacteriochlorophyll *c* and *d*, *Photosynth. Res.* 86, 137-143.
 12. Frigaard, N. U., Chew, A. G., Li, H., Maresca, J. A., and Bryant, D. A. (2003) *Chlorobium tepidum*: insights into the structure, physiology, and metabolism of a green sulfur bacterium derived from the complete genome sequence, *Photosynth. Res.* 78, 93-117.
 13. Harada, J., Saga, Y., Yaeda, Y., Oh-Oka, H., and Tamiaki, H. (2005) In vitro activity of C-20 methyltransferase, BchU, involved in bacteriochlorophyll *c* biosynthetic pathway in green sulfur bacteria, *FEBS Lett.* 579, 1983-1987.
 14. Harada, J., Wada, K., Yamaguchi, H., Oh-oka, H., Tamiaki, H., and Fukuyama, K. (2005) Crystallization and preliminary X-ray diffraction study of BchU, a methyltransferase from *Chlorobium tepidum* involved in bacteriochlorophyll *c* biosynthesis, *Acta Crystallogr. Sect. F Struct. Biol. Cryst. Commun.* 61, 712-714.
 15. Wada, K., Yamaguchi, H., Harada, J., Niimi, K., Osumi, S., Saga, Y., Oh-Oka, H., Tamiaki, H., and Fukuyama, K. (2006) Crystal structures of BchU, a methyltransferase involved in bacteriochlorophyll *c* biosynthesis, and its complex with S-adenosylhomocysteine: implications for reaction mechanism, *J. Mol. Biol.* 360, 839-849.
 16. Chew, A. G., and Bryant, D. A. (2007) Chlorophyll biosynthesis in bacteria: the origins of structural and functional diversity, *Annu. Rev. Microbiol.* 61, 113-129.
 17. Miyatake, T., Oba, T., and Tamiaki, H. (2001) Pure and scrambled self-aggregates prepared with zinc analogues of bacteriochlorophylls *c* and *d*, *Chembiochem.* 2, 335-342.
 18. Steensgaard, D. B., van Walree, C. A., Permentier, H., Baneras, L., Borrego, C. M., Garcia-Gil, J., Aartsma, T. J., Amesz, J., and Holzwarth, A. R. (2000) Fast energy transfer between BChl *d* and BChl *c* in chlorosomes of the green sulfur bacterium *Chlorobium limicola*, *Biochim. Biophys. Acta.* 1457, 71-80.

Bacteriochlorophyll Molecules Assembled in a Huge Antenna Complex, Chlorosome, of Green Sulfur Bacteria: Its Biosynthesis and New Frontier

Jiro Harada^{1*}, Hirozo Oh-oka², and Hitoshi Tamiaki³

¹Department of Medical Biochemistry, Kurume University School of Medicine

²Department of Biological Sciences, Graduate School of Science, Osaka University

³Institute of Science and Engineering, Ritsumeikan University